

晶体缺陷的光散射层析法研究

崔承甲

摘要:所谓光散射层析法,就是用一束光扫描晶体样品,同时用照相机把晶体中的散射光拍摄出来,得到类似于X射线形貌图的照片。通过光散射照片可以知道晶体的缺陷及其性质。本方法可作非破坏性缺陷的三维空间分析。只要晶体对扫描波长是透明的,就可以使用这种方法观察晶体缺陷。对X射线质量吸收系数大的晶体来说,这种方法显得更优越,那就是不需要精制的X射线形貌用的薄片样品。本方法也可用于金刚石、宝石类的非破坏性检查。本文介绍光散射层析法的原理及实验。

一、前言

众所周知,近三十年来电子工业发展非常迅速。以单晶硅为代表的晶体材料在其发展中占有非常重要的地位。为了提高晶体材料的质量,先后开发了评价晶体的各种方法,其中较多的是利用电子束或离子束来观察晶体表面和做组分分析。例如低能电子衍射法、离子探针、扫描电子显微镜等。但是要想评价生长出的晶体时,需要的不仅是对晶体表面而且还要对晶体内部做非破坏性观察。X射线形貌法大致可以非破坏性地评价晶体质量,但是要求样品必须很薄。在医学上引人注目的CT技术是属于非破坏性的检查人体,分辨本领可达1mm。CT技术的发明者获得医学诺贝尔奖金^[1]。日本学习院大学小川智哉教授利用光散射现象,以比波长更小的分辨本领,拍摄出离晶体表面几个厘米深的晶体缺陷层析照片,并确立了光散射层析技术^[2]。

晶体中的缺陷大体上由点缺陷、线缺陷、面缺陷以及它们的复合缺陷来组成的。作为评价晶体质量的方法来说,有必要搞清缺陷的性质、分布和生长机理的关系,缺陷和器件性能之间的关系。这常常需要知道晶体缺陷的二维、三维空间分布。因此,光散射层析法可作为扫描电子显微镜和X射线形貌法的互为补充的一种有效方法来使用。该方法直接从散射体得到信息,而且,散射体不限于沉淀物那样的异种物质而且未经缀饰处理的位错线等位相物体也可以测出来。

二、光散射层析装置

利用光散射的显微观察方法是历史悠久。原始装置是所谓的超倍显微镜,该方法是对显微镜光轴倾斜角度照明样品,根据丁达尔现象在暗视场观察闪亮的散射体,因此,可以观察到远远超过普通光学显微镜分辨极限(0.25 μm)的散射体。在以前不少人做过用光散射观察晶体缺陷的实验^[3,4],样品是经过金属沉淀体缀饰或热处理缀饰之后才能观察到晶体缺陷,没经处理的样品不能使用。其理由有两个,一是用于观察的光学系统光强太弱,而且没有采取消除杂光的措施。二是没有考虑晶体缺陷的光散射强度和散射矢量方向之间的关系。如果充分注意上述情况,采用相应的措施,则可以得到和X射线形貌图匹敌的晶体缺陷层析图,进而

可以分析出缺陷的性质。光散射层析法的装置如图 1 所示。拍摄晶体缺陷的原理大体上和 X 射线的形貌法相同。首先把激光用透镜聚焦成 $20\mu\text{m}$ 光束入射到样品，样品中散射的光通过照相物镜成像，但从光路以外散射的光被照相底片前部的狭缝所挡住。照相时，暗盒和样品用匹配物镜倍率的一定速度沿相反方向运动，以得到激光束扫描样品的层析照片。

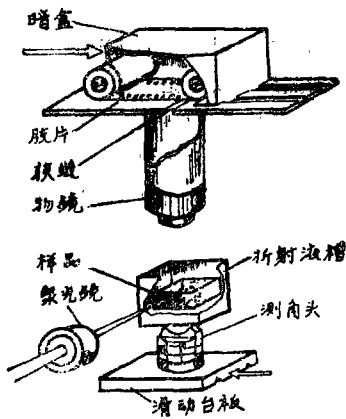


图 1 光散射层析法实验装置

晶体缺陷的散射光是非常微弱的，因此曝光时间需要 $1\sim 3\text{ h}$ 。为了得到高质量的层析照片，必须尽可能去掉杂光。这对光散射法来说，是决定观测缺陷界限的最重要的因素之一。杂光的主要来源是样品表面的散射。为了去掉表面散射，就要对样品表面进行抛光。对生长出的晶体表面想要不经加工观察时，可把样品浸入折射液槽内，并且设法去掉折射液槽的杂光，即进行消光处理。还有，尽可能把照明光束变细一些为好。这是为了减小光束和晶体内大散射体之间的碰撞几率，以利于减少杂光。另外，在光束聚焦很细以后，使光束单位横截面积的光强相对增强，因此容易观察到晶格缺陷的微弱散射

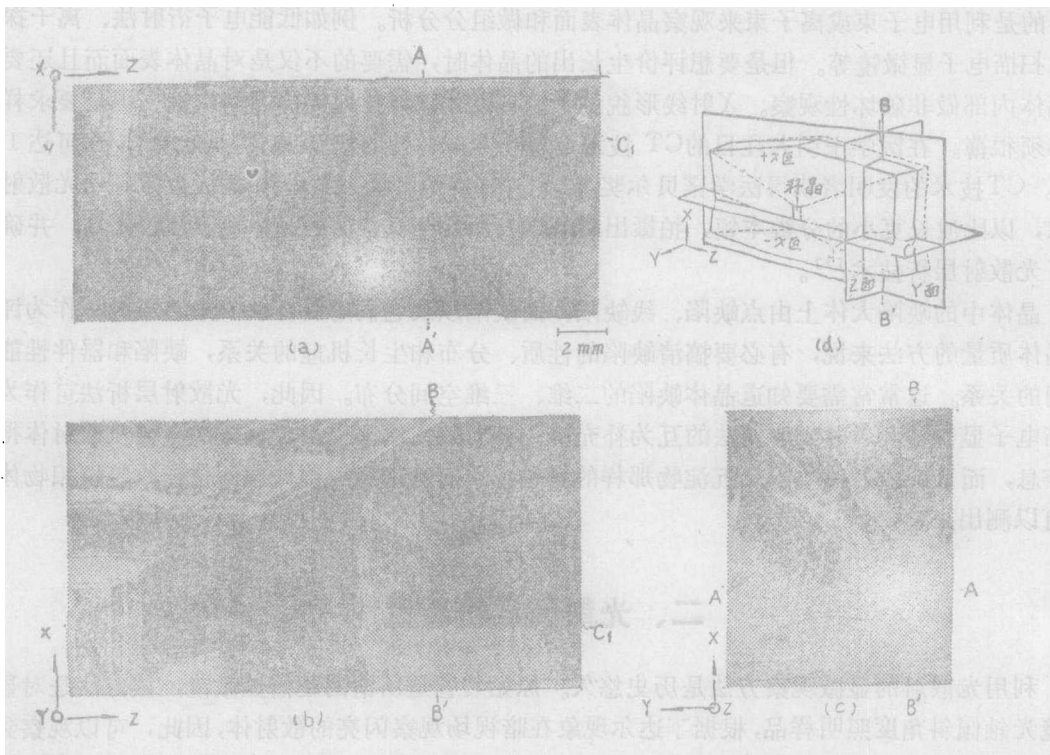


图 2 用光散射层析法拍摄的水晶内部的三维照片(a)和(b)是包含螺位错中心 C_1 的层析照片，(c)是Z面的层析照片。(d)表示拍摄的位置。

在晶体中的光散射强度随着散射矢量变化的情况下，如果采用固定样品和底片，再用移动激光束来扫描样品的方法，那么在底片上像的对比度将随着散射矢量的方向发生变化。如果采用这里的装置(图 1)，在狭缝附近散射矢量的差别很小。又因为固定了激光光束，所以

和底片运动方向无关。因此能够消除散射矢量变化引起的散射象对比度的变化。

三、晶格缺陷的光散射^[5]

Rayleigh和Mie等人的散射理论认为散射中心和周围介质之间的光学常数是不连续的，也就是粒子的光散射。在晶体中晶格缺陷及其周围光学常数的变化情况，像晶格缺陷周围的应变场那样，应该具有光学常数变化的扩展区域，并且是连续的，而不是阶梯式的。因此，引用粒子光散射模型来讨论晶格缺陷的散射是很生硬的。

光通过晶体时束缚电子极化，产生偶极子辐射（散射光），入射光和散射光经过干涉后以折射光和反射光的形式传播出来。因此，根据电子的电磁波散射观点，可以采用X射线散射的方法处理晶体中的光散射问题。因此，散射因子 f 可由下式给出

$$f = \rho(\mathbf{r}) \exp[i(2\pi/\lambda)\mathbf{g}\cdot\mathbf{r}] d\tau \quad (1)$$

这里 $\rho(\mathbf{r})$ 是和折射率有关的电子密度， r 为中心到 $d\tau$ 的距离， \mathbf{g} 为散射矢量， $|\mathbf{g}| = 2\sin\theta$ ， 2θ 为入射光和散射光的夹角， λ 为光的波长。

1. 球形晶格缺陷

设球形晶格缺陷的电子密度分布为：

$$\rho(r) = \rho_0 + A \frac{\sin ar}{ar} \quad (2)$$

其中， ρ_0 为平均电子密度， a 为表示非均匀大小的参数， A 为强度参数。坐标原点设在球心。

(2)式代入(1)式得到：

$$f = \int_0^l 4\pi r^2 \rho_0 \frac{\sin \mu r}{\mu r} dr + A \int_0^l \frac{\sin ar}{ar} 4\pi r^2 \frac{\sin \mu r}{\mu} dr = f_1 + f_2 \quad (3)$$

其中 $\mu = 4\pi\sin\theta/\lambda$ ， l 为激光束半径。(3)式的第一项，当 $\theta = 0$ 时具有 $(4\pi/3)l^3\rho_0$ 的值。这就是说，在电子均匀分布的情况下，除前方散射外没有其它散射发生。第二项为

$$f_2 = \frac{4\pi A}{a\mu} \frac{\mu \sin a l \cdot \cos \mu l - a \cos a l \cdot \sin \mu l}{a^2 - \mu^2} \quad (4)$$

当电子密度的摆动小于光波长时有散射，当密度缓慢变化时将不发生散射。

2. 刃形位错

在刃形位错的周围有压缩应变，近似地可以表示为

$$\varepsilon(r, \varphi) = -\frac{b}{2\pi} \frac{1-2\gamma}{1-\gamma} \frac{\sin \varphi}{r} \quad (5)$$

其中， b 为Burgers矢量的大小， γ 为泊松比， φ 为 \mathbf{b} 和 \mathbf{r} 的夹角， r 为位错线到观察点的距离。设位错附近的电子密度和应变场成正比，则电子密度 $\rho(r)$ 可写成如下形式

$$\rho = \rho_0 + K\varepsilon(r, \varphi) \quad (6)$$

这里 K 为比例系数，对应于弹光系数。如果仅仅考虑 90° 的光散射，将(6)式代入(1)式，经计算得出散射因子 f ，

$$f = -i4\pi \frac{EZ_0}{C} \cos B \frac{\sin(DZ_0)}{DZ_0} \quad (7)$$

式中,

$$E = -\frac{b}{2\pi} K \frac{(1-2\gamma)}{1-\gamma}$$

$$C = \frac{2\pi}{\lambda} (g_x^2 + g_y^2) 1/2$$

$$D = \frac{2\pi}{\lambda} g_x$$

$$\text{tg } B = -\frac{g_x}{g_y}$$

$2Z_0$ 为物镜的分辨本领。(7)式中 $DZ_0 = \left(\frac{2\pi}{\lambda}\right)$ 。

当 $g_x Z_0 \sim 0$ 时才存在有限值, 因为 $Z_0/\lambda > 1$, 所以 $g^* = 0$ 。由此可知, 只有散射矢量 g 垂直于位错线才能观察到散射。单位长度位错线的光散射能由下式给出

$$\begin{aligned} |F|^2 &= \left| \frac{f}{2Z_0} \right|^2 = \frac{1}{2} \lambda^2 E^2 \cos^2 B \\ &= \frac{b^2 \lambda^2 K^2}{8\pi^2} \left(\frac{1-2\gamma}{1-\gamma} \right)^2 \frac{g_y^2}{g_x^2 + g_y^2} \quad (8) \end{aligned}$$

当 $g_x = 0$ 时, 也就是说散射矢量 g 垂直于 Burgers 矢量 b 和位错线所确定的平面时散射本领最大, 平行时没有散射。

3. 面缺陷

在晶面上析出的杂质层、晶界、双晶和层错等属于面缺陷。假设这些面缺陷的电子密度和晶体之间相差 $\Delta\rho$, 则散射因子为

$$f = \iiint \Delta\rho \exp[i(2\pi/\lambda)(g_x x + g_y y + g_z z)] dx dy dz \quad (9)$$

设散射体的尺寸按 x 、 y 、 z 轴方向分别为 $2a$ 、 $2b$ 、 $2c$, 见图4, 则得到散射因子 f

$$\begin{aligned} f &= \Delta\rho V \frac{\sin(2\pi g_x a/\lambda)}{2\pi g_x a/\lambda} \cdot \frac{\sin(2\pi g_y b/\lambda)}{2\pi g_y b/\lambda} \\ &\cdot \frac{\sin(2\pi g_z c/\lambda)}{2\pi g_z c/\lambda} \quad (10) \end{aligned}$$

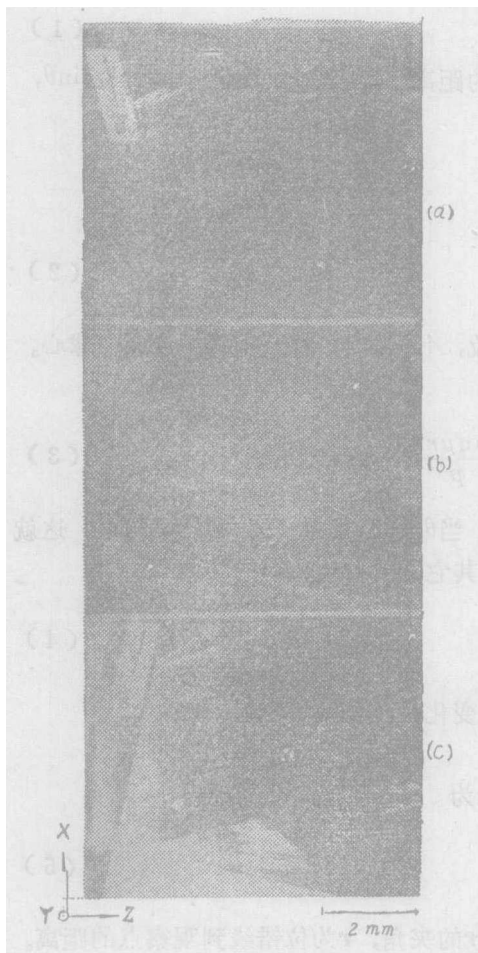


图3 人工水晶Z生长区刃形位错的光散射照片。入射光 S_0 在 Y 面上扫描。图中显示的线状散射体就是未经缓饰的位错。这些位错线和 Z 轴成角 $10 \sim 15^\circ$, 但是只在入射光 S_0 和位错线垂直时才能看到。另外, 被缓饰的位错和入射光方向无关的散射亮点就是球形散射体

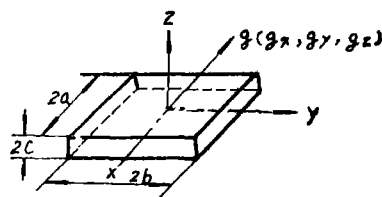


图4 片状散射体

式中, $V = 8abc$, 即散射体的体积。设面缺陷为 $a \sim b \gg c$, 则当 $g_x = g_y = 0$ 时, 只有散射矢量垂直于缺陷平面时才能观察到光散射。在图5的 CaF_2 单晶层错照片中, 散射矢量的偏离量在小于 $2^\circ \sim 3^\circ$ 时才能观察出来, 否则观察不出来。

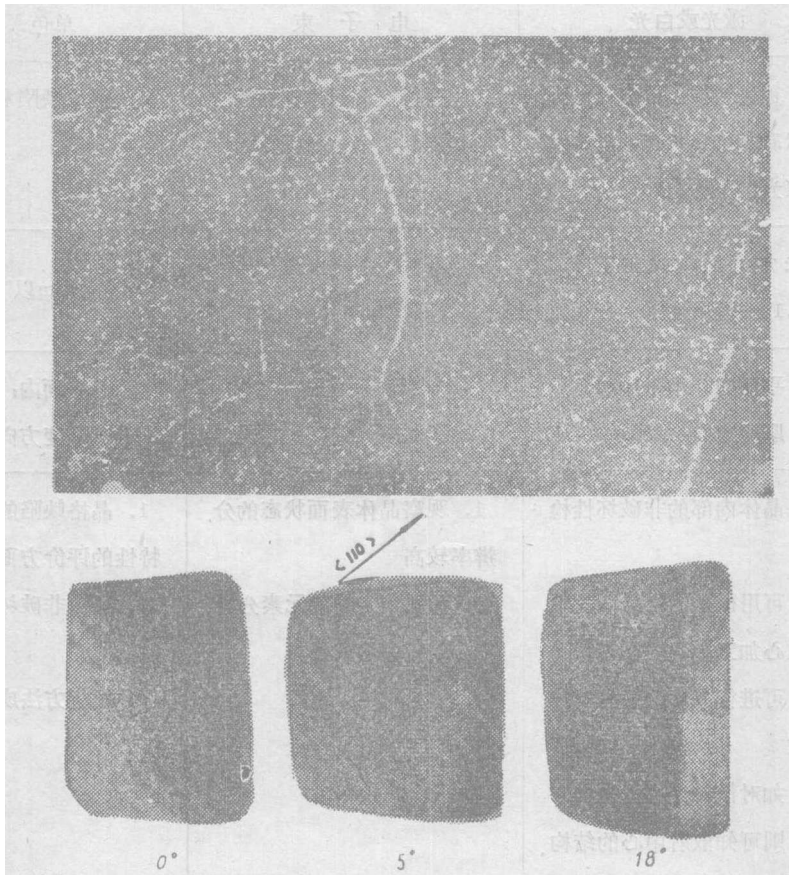


图5 上图: 光散射层析法的 CaF_2 单晶的层错照片, 层错面和散射矢量垂直 (放大14倍)
下图: 同一样品的阴影法照片, 三张照片是将晶体绕铅直轴分别转动 0° 、 5° 、 18° 拍摄的 (大约1倍)

四、光散射层析法的展望

应用光散射层析法适当选择散射矢量, 可以拍摄出晶体中的位相物体的照片。还可以通过散射矢量方向和照片的变化情况来判定散射中心的性质。如果采用超倍显微的扫描方法, 则可以超出光学透镜分辨率来观察出散射中心。

用扫描方法取得照片的还有扫描电子显微镜和X射线衍射法 (Lang法)。从评价晶体特性的角度, 在表1中列出了各自的特长。如果结合电子计算机技术可发展成为计算机层析法 (CT), 如果采用红外光作扫描光源, 检查可见光不透明晶体, 可称作红外光散射层析法^[6], 如单晶硅, 砷化镓等的检查。如果对散射光做光谱分析, 则可以知道散射体结构和化学状态, 可称作喇曼光谱层析法^[6]。晶体的荧光成象也是可以的。总之, 光散射层析法是一种有前途的检查晶体缺陷的方法。

表 1

	光散射层析法	扫描电镜	X射线衍射显微法
照明	激光或白光	电子束	单色X射线
观察对象	被光波极化的电子的分布状态和结合状态的异常现象(光学不均匀)	在真空下固体表面的凹凸情况和成分分析	晶格缺陷和晶格应变
样品厚度	未加工晶体或加工成0.12~数厘米厚	反射型: 毫米级 透射型: 0.1 μm 以下	1mm以下
分辨率	平面内: 小于1 μm 厚度方向: 20 μm	几个nm	平面内: 1 μm 厚度方向: 1mm
特点	<ol style="list-style-type: none"> 1. 晶体内部的非破坏性检查 2. 可用很厚的样品, 故不必担心加工影响的晶格缺陷 3. 可进行晶体缺陷分类和鉴定 4. 如对散射光进行光谱分析, 则可知散射中心的结构和化学状态 	<ol style="list-style-type: none"> 1. 观察晶体表面状态的分辨率较高 2. 可做半定量的元素分析 3. 解析方法成熟 	<ol style="list-style-type: none"> 1. 晶格缺陷的鉴定, 晶体特性的评价方面便利 2. 可做非破坏性检查但样品很薄 3. 解析方法成熟
缺点	不能用于不透明的样品	只能观察真空中的样品	按衍射矢量, 每次需要精制的样品

参 考 文 献

- [1] 渡道英二, コンピュータを利用して人体の断層像を撮る撮影装置, 日経エレクトロニクス, 1977, 1月10日号, 102.
- [2] 日刊工業新聞, 光の散乱現象を利用——深さ数センチまで結晶欠陥検出, 1983, 8月22日
- [3] M. Tajima and T. Iizuka, Direct Observation of Dislocations in a LEC—GaP Crystal by Light Scattering Method, Jpn. J. Appl. Phys., 1976, 15, 651.
- [4] 田島道夫, 結晶欠陥を観る, 光散乱法, 応用物理, 1979, 48, 1, 54.
- [5] 小川智哉, 守矢一男, 光散乱トモグラフィー, 日本物理学会誌, 1980, 35, 第4号, 306.
- [6] 守矢一男, 光散乱トモグラフィーによる結晶欠陥観察法, 利亜留工芸社, 東京, 日本, 1983, 95~96.

Studying Crystal Defects by Light-Scattering Tomography

Cui Chengjia

Abstract

The tomography method with scattering light is that a crystal is scanned with a beam of light. Meanwhile, like a X-ray topograph, the topograph of scanning light from the crystal is taken with a camera. Through the scanning topograph, the imperfections and the Characteristics of the crystal can be known. This method can be used as nondestructive three-dimensional analysis of imperfections. As long as the crystal is transparent to the scanning wave-length, the crystal imperfections can be observed by this method. The method is excellent, especially for the crystals which have large X-ray mass-absorbing coefficients as fine-made slice used in X-ray observation is unnecessary. This method can also be used to test diamond, jewel and so on nondestructively.

In this paper, the principle and experiment about the tomography method are introduced.